

BEST AVAILABLE COPY

PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 11-005029

(43)Date of publication of application : 12.01.1999

(51)Int.Cl.

B01J 19/00
C04B 37/00

(21)Application number : 10-094957

(71)Applicant : EASTMAN KODAK CO

(22)Date of filing : 07.04.1998

(72)Inventor : GHOSH SYAMAL K
CHATTERJEE DILIP K
FURLANI EDWARD P

(30)Priority

Priority number : 97 835979

Priority date : 11.04.1997

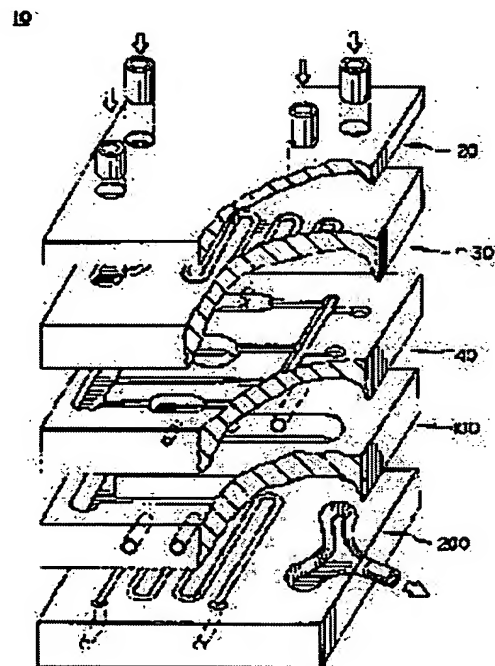
Priority country : US

(54) INTEGRATED MICRO-CERAMIC CHEMICAL PLANT

(57)Abstract:

PROBLEM TO BE SOLVED: To produce a chemical plant whose size is one several thousandth or less of an industrial chemical plant by sintering plural unsintered ceramic layers to form a united ceramic body including a single ceramic body with a mixing chamber and a fluid passage means communicating with the mixing chamber and a single ceramic body with a sending means to discharge mixed chemical materials.

SOLUTION: For example, five different unsintered ceramic layers are sintered to form a united ceramic body 10. The top ceramic layer 20 has passages on opposite sides of the ceramic body 10. The passages receive fluids contg. chemical materials to be mixed, reacted or analyzed and introduce them into the 2nd ceramic layer 30 with a mixing chamber and a mixing channel or a 3rd ceramic layer 40 with a reaction chamber. The 4th ceramic layer 100 has an analysis channel for analyzing chemical materials and the bottom ceramic layer 200 has a discharge channel for discharging a reaction product. Satisfactory mixing can surely be carried out in a short time and efficient heat control is enabled.



LEGAL STATUS

[Date of request for examination]

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

1.

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開平11-5029

(43) 公開日 平成11年(1999) 1月12日

(51) Int.Cl.⁸

B 0 1 J 19/00

C 0 4 B 37/00

識別記号

3 2 1

F I

B 0 1 J 19/00

C 0 4 B 37/00

3 2 1

C

審査請求 未請求 請求項の数 3 O L (全 9 頁)

(21) 出願番号 特願平10-94957

(22) 出願日 平成10年(1998) 4月7日

(31) 優先権主張番号 8 3 5 9 7 9

(32) 優先日 1997年4月11日

(33) 優先権主張国 米国 (US)

(71) 出願人 590000846

イーストマン コダック カンパニー
アメリカ合衆国, ニューヨーク14650, ロ
チェスター, ステイト ストリート343

(72) 発明者 サイアマル ケイ ゴーシュ

アメリカ合衆国, ニューヨーク 14612,
ロチェスター, クライトン・レーン 42

(72) 発明者 ディリップ ケイ チャタジー

アメリカ合衆国, ニューヨーク 14626,
ロチェスター, ウェイランド・ウッズ・レ
ーン 118

(74) 代理人 弁理士 伊東 忠彦 (外1名) /

最終頁に続く

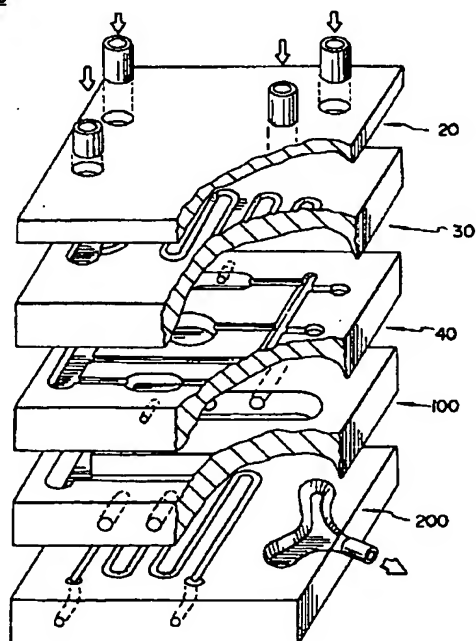
(54) 【発明の名称】 集積マイクロセラミック化学プラント

(57) 【要約】

【課題】 平均的な産業用化学プラントの大きさの数千分の一より小さい集積マイクロセラミック化学プラントを提供する。

【解決手段】 混合室と、2以上の流体が流体内の化学物質を混合、又は反応させるために該混合室に供給されるよう混合室と連通させるための通路手段とを画成する単一セラミック体と；混合された化学物質を単一セラミック体から放出する配送手段を含む単一セラミック体とからなる未焼結状態の複数のセラミック層を共に焼結して形成された一体化セラミック体を有する集積マイクロセラミック化学プラント。

10



1

【特許請求の範囲】

【請求項1】(a) 混合室と、2以上の流体が流体内の化学物質を混合、又は反応させるために該混合室に供給されるよう混合室と連通させるための通路手段とを画成する単一セラミック体と；

(b) 混合された化学物質を単一セラミック体から放出する配送手段を含む単一セラミック体とからなる未焼結状態の複数のセラミック層を共に焼結して形成された一体化セラミック体を有する集積マイクロセラミック化学プラント。

【請求項2】(a) 反応室と、2以上の流体が流体内の化学物質を反応させるためにそのような反応室に供給されるよう反応室と連通させるための通路手段とを画成する単一セラミック体と；

(b) 反応した化学物質を単一セラミック体から放出する配送手段を含む単一セラミック体とからなる未焼結状態の複数のセラミック層を共に焼結して形成された一体化セラミック体を有する集積マイクロセラミック化学プラント。

【請求項3】(a) 化学物質を含む少なくとも2つの流体を供給する通路が形成された第一のセラミック層と；

(b) 化学物質を含む流体を混合する通路と連通する第二の層の混合室を含む第二のセラミック層と；

(c) 流体内の化学物質を反応させる第三の層の反応室を含む第三のセラミック層と；

(d) 化学反応の結果を分析するために用いられる第四層の分析室を含む第四のセラミック層とからなる少なくとも4つの未焼結状態のセラミック層を共に焼結して形成された多層の一体化セラミック体を有する集積マイクロセラミック化学プラント。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】本発明は化学物質の混合、反応、又は解析に用いられる集積セラミックマイクロ化学プラントに関する。

【0002】

【従来の技術】マイクロエンジニアリングは今後にわたり多くの応用に衝撃を与えうる急速に成長している分野である。シリコンプレーナ技術を含む三次元マイクロエンジニアリングのデバイス及びシステムはミクロン又はミクロン以下のレベルの公差を有する1から数百ミクロンのものが製造可能である。現在のマイクロエンジニアリング技術のほとんどは酸化シリコン、二酸化シリコン、窒化シリコン及び同様の薄膜が堆積され、エッチングされ、その後プレーナ構造が得られるシリコンウエーハに通常適用される薄膜、フォトリソグラフィ、エッチング技術の応用から進化している。

【0003】シリコンチップ上にプレーナ構造を用いるミクロな流体学システムの技術に基づく化学的処理の

2

研究は進展してきた。予測的流れモデリングはまたミクロ流体技術からの恩恵を実現するよう発展してきた。化学的処理の性能はシステムの質量の輸送及びある場合には熱輸送性能により制限される。故に化学的処理への影響を最小化する方法を理解することが重要である。チューブ又はチャンネル内の理想液体の層流はうまく特徴づけられる。Pfahler等はシリコンウエーハ上で種々のジオメトリのチャンネルを用いた実験で従来のハーゲン-ポアズイユの式が数ミクロンのスケールにまで適用可能なことを結論づける実験と理論との間の一致が存在することを示した。円形の管内の理想流体の単位時間当たりの層体積流 Q_f はハーゲン-ポアズイユの式により以下のように表される：

【0004】

【数1】

$$Q_f = \frac{\pi}{8\mu_f} \frac{dp}{dx} r^4$$

【0005】ここで μ_f 及び r はそれぞれ流体の粘度及びチューブの半径であり、 dP/dX は流れの x 方向に沿った圧力勾配である。チャンネル幅が減少するにつれて流体の流れは材料の分布にわたる制御を提供し、液体の混合が乱流よりもむしろ拡散又は他の分子的な移動プロセスにより達成される層流により近くなる。混合のこの問題は流体力学の計算の市販のソフトウェアパッケージにより解決される。混合の度合いの尺度 F は $F = Dt/l^2$ から推定され、ここで D は反応物の拡散定数、 t は混合に対して許容される接触時間、 l は反応物の流れの幅である。量的には混合は0.1から1までの F の値に対して実質的にはほぼ完全に決定される。1秒で、2つの液体の典型的な完全に近い混合は100ミクロンのチャンネル幅に対応する。

【0006】類似のことは層流の条件下にあるマイクロチャンネルでの熱伝送に当てはまる。この熱の層流プロセスの理解は微小熱交換及び化学的マイクロ反応を設計し、製作するのに有用である。現在のプレーナシリコン技術は埋込構造及び一体化構造を有する集積された組み込み式マイクロ化学プラントの製造に対して適切ではない。

【0007】

【発明が解決しようとする課題】本発明の目的は集積マイクロセラミック化学プラントを提供することにある。本発明の他の目的は平均的な産業用化学プラントの大きさの数千分の一より小さい集積マイクロセラミック化学プラントを提供することにある。

【0008】

【課題を解決するための手段】これらの目的は

(a) 混合室と、2以上の流体が流体内の化学物質を混合、又は反応させるために該混合室に供給されるよう混合室と連通させるための通路手段とを画成する単一セラミック体と；

(b) 混合された化学物質を単一セラミック体から放出する配送手段を含む単一セラミック体とからなる未焼結状態の複数のセラミック層を共に焼結して形成された一体化セラミック体を有する集積マイクロセラミック化学プラントにより達成される。

【0009】

【発明の実施の形態】図1を参照するに、5つの異なるセラミック層を含む一体化セラミック体10の斜視図が示される。それぞれのセラミック層は最初は未焼結状態であるが一体化セラミック体10を形成するために共に焼結される。一体化セラミック体10の上部セラミック層20は一体化セラミック体10の反対側に通路12、14を有する(図2を参照)。通路12、14は本発明により混合され、反応され、分析される化学物質を含む流体を受けるように適合される。上部セラミック層20は2以上の通路12、14を有する。通路12は混合室31及び混合チャンネル26を含む第二のセラミック層30に直接導かれる。あるいは通路14が混合室31をバイパスするために第三のセラミック層40に直接導かれる。第三のセラミック層40は反応室44、46、48を画成する(図5を参照)。図1を参照するに、第四のセラミック層100は化学処理を分析する分析チャンネル72を含む。底又は五番目のセラミック層200は反応生成物を放出する放出チャンネル80を含む。埋込加熱コイル84が一体化セラミック体10を加熱するために第五のセラミック層200に形成される。埋込加熱コイル84はそれが一体化セラミック体10全体を加熱する限り第五のセラミック層200に配置される必要はない。

【0010】本発明は集積マイクロセラミック化学プラントを含む。「マイクロ」という用語が用いられるときそれは化学プラント内の構造は約100ミクロン以下の寸法であることを意味する。一体化セラミック体10は共に焼結される未焼結状態の複数のセラミック層により形成される。これらの層は典型的には10から100mm幅、10から100mmの長さ、1から10mmの厚さを有する。

【0011】「未焼結」という用語の使用は好ましくは有機物バインダーと混合された特定のセラミック粉が均一な密度を有する焼結されない予備的形成物を供給するために均一な形成力を受けることを意味する。特に有用な材料の一つは射出成形、ゲルキャスト、テープキャスト、乾燥プレス、又は均衡プレスのような標準的な方法により層を形成するためにマイクロモールド形成される正方晶系のジルコニアセラミック粉である。用いられる他のセラミック材料は Al_2O_3 、 ZrO_2 、 AlN 、 BN 、 MgO 、 $Al_2O_3-ZrO_2$ 、 SiC 、 Si_3N_4 及び他の酸化物及び酸化物でないセラミック及びそれらの複合物のようなセラミックである。

【0012】室、チャンネル、通路のような各層内の構

造は以下のように形成される:

(a) フィードスルー、通孔、混合室、反応室のような構造はモールド内にこれらの構造を組み込むことにより未焼結段階で各層に形成される。構造は焼結中の収縮を考慮して約20%から50%より大きく作られなければならない。収縮の量はセラミック混合物内の有機バインダーの量による。典型的には2から5重量%の有機バインダーが常温等方性プレス及び乾燥プレスのような形成プロセスに対して加えられる。他方で10から40重量%の有機バインダーがゲルキャスト、テープキャスト、射出成形のような形成プロセスに対して加えられる。

【0013】(b) 埋込螺旋コイル及び加熱コイルのような構造は焼結プロセス中に燃え尽きる有機ポリマーからなる犠牲部材を置くことにより形成可能である。埋込微小構造の形成の詳細はChatterjee等により1997年1月2日出願された米国特許出願08/775523, "Miniature Molded Ceramic Devices Having Embedded Spiral Coils" 及び1997年1月2日出願された米国特許出願08/775524, "Method for Forming Molded Ceramic Devices Having Embedded Spiral Coils" に記載され、これらをここに参考として引用する。

【0014】(c) マイクロチャンネルのような構造は焼結中に燃え尽きる犠牲部材を埋め込むことにより形成され、又はモールド形成ツールに設けられる。焼結プロセス中に未焼結セラミック層は収縮する。この収縮に対する補正をするための対策がとられなければならない。図2を参照するに、2つの異なる列に配置される通路12、14を含む上部セラミック層20の斜視図である。一つの列を形成する複数の通路12は通孔13に直接配置され、別の列を形成する複数の通路14は通孔15に直接配置される。通孔の列(図を明確にするために2つのみが示される)は混合室(第二のセラミック層30)の通孔29へ接続され反応室44、46、48に接続された分配マニフォールド48aに接続される分配室43に供給する。通路12、14は有機バインダーと複合されたセラミック粉を押し出し成形することにより形成される。通孔13、15を含む上部セラミック層20はセラミック粉を乾燥プレスすることにより製造される。上部セラミック層20及び通路12、14は別々に又は同時に焼結され、これにより通路12、14は焼結中に上部セラミック層20上に結合される。構造を形成する上部セラミック層20及び通路12、14が別々に焼結される場合にはそれらは後で鋳付け又はエボキシ接着される。

【0015】図3は上部セラミック層20からの化学物質を含む流体を受ける混合室31を含む第二のセラミ

5

ク層30を示す斜視図である。混合室31から出る複数のチャンネル24は集合し直線、曲がりくねり、複合、波形及び角度をなす形又は形状を有する単一の混合チャンネル26を形成する。通孔29(2つのみ示される)の列は上部セラミック層20の通路14と連通させるよう第二のセラミック層30に配置される。混合チャンネル26は第三のセラミック層40に併合される通孔28に通じる。図4は混合チャンネル26が円形に構成された第二のセラミック層30の断面図を示す。混合室31は長方形、楕円形、円形、又はいかなる従来の形でもありうる。通孔28は第三のセラミック層40で分配室42に直接連結される。

【0016】図5を参照するに、一体化セラミック体10の反応室44、46、48を示す斜視図である。第三のセラミック層40は複数の連通流体チャンネル45、47及び分配マニフォールド48aを含む。通孔28は反応室44、46、48に分配されたところから化学物質を含む流体を分配室42に供給する。混合チャンネル27で混合される必要のない化学物質を含む付加的な流体は分配室43に直接供給される。反応室44、46、48は以下に説明するようにヒーター、攪拌器、又はフィルタをそれぞれ設ける。分配室43からの化学物質は反応室44、46、48にそれぞれ分配され、又は分配マニフォールド48aを通して結合される。化学物質は処理の必要により別々に又は順次に反応室44、46、48に分配される。反応室44、46、48への別々の分配に対して、一又は二方向バルブがチャンネル45に組み込まれる。あるいは化学物質は反応室44、46、48をバイパスして、チャンネル47を介して一時保存タンクに直接供給される。反応室44、46、48は熱電対と攪拌器を挿入する供給通孔52、54をそれぞれ含む。保存タンク50は熱電対が挿入される供給通孔56を含む。あるいは流れの断続器がまた流体をその室内に保存するよう孔57を通して挿入される。図6、7はそれぞれ図5の線4A-4A、4B-4Bに沿った断面図である。保存タンク50と連通する第四のセラミック層100は次の室に対して完全に又は部分的に開かれる。図7に示されるように保存タンク50の底には望ましいときに手動又は自動で開閉される通孔57が設けられる。

【0017】図8を参照するに、反応室の斜視図が示される。反応室44、46、48は正方形、長方形、楕円形、円形、又はいかなる所望の幾何的な形をとりうる。供給通孔は反応物を乱流で混合する電氣的に作動される攪拌器を挿入するために反応室48の一側に設けられる。攪拌器61はプラスチック又はステンレススチールで作られた折り畳み可能なブレード59を有し、ステンレススチールで作られる。

【0018】図9を参照するに、反応室44を加熱する導電性パッド60を通して外部電源(図示せず)に接続

6

された埋込螺旋コイル構造63を有する反応室44の斜視図を示す。化学反応プロセスをモニタする分析装置を挿入する供給通孔52がまた設けられる。埋込螺旋コイル構造63の構成はW、Ta、Moのような耐熱性金属でできた犠牲プラスチックコイルで未焼結セラミックをモールド形成することにより達成される。プラスチックの犠牲コイルは空気中での焼結中に燃え尽きる。耐熱性金属の犠牲コイルはセラミックプラントが焼結された後にNaOH又は水酸化アンモニウムでのエッチングにより除去される。セラミック体に埋め込みコイルを設ける手順はChatterjee等により1997年1月2日に出願された米国特許出願08/775523、"Miniature Molded Ceramic Devices Having Embedded Spiral Coils"及びChatterjee等により1997年1月2日に出願された米国特許出願08/775524、"Method for Forming Molded Ceramic Devices Having Embedded Spiral Coils"に記載され、これらをここに参考として引用する。

【0019】図10を参照するに、反応室46が選択されたセラミックで作られ、一体化セラミック体10の統合された部分として形成されるフィルタ62からなる区画として形成されるのが示される。通孔64は固体の沈殿物を回収するために反応室46の底に設けられる。通孔64は連続する層を通して第五のセラミック層200へ続く。他の適合された通孔66は熱電対及びその接続線を挿入するために室に設けられる。各反応容器44、46、48は一体化セラミック体10の統合された部分として一以上のフィルタからなる部品で形成される。

【0020】図11を参照するに、一体化セラミック体10の分析室100の斜視図が示される。保存タンク70が第三のセラミック層40の保存タンク50(図5)の下に配置される。保存タンク50は第四のセラミック層100の両側の供給通孔74、76が設けられた分析チャンネル72に供給する。質量及び光学的スペクトロスコープが設けられ、ファイバー光学転送を介して一体化セラミック体10の外と連通する。保存タンク70から離れたチャンネルの他端は第五のセラミック層200に化学物質を供給するために通孔78が設けられる。

【0021】図12を参照するに、孔78を通して化学物質を受け、通路82を通して最終的に分配容器への放出チャンネル80を含む第五のセラミック層200の斜視図が示される。第五のセラミック層200はまた一体化セラミック体10を加熱するために埋め込み加熱コイル84を有する一体化加熱素子を設ける。埋込加熱コイル84はMOSi₂、TiB₂、ZrB₂のようなセラミック材料で作られる。埋込加熱コイル84用の電氣的リード86は第五のセラミック層200の側面に配置さ

れ、その一体化された部品である。温度をモニタし、制御するために供給通孔 90 は外側から第五のセラミック層 200 の表面へ角度をなして貫通している。

【0022】本発明はその特定の実施例を特に参照して詳細に説明されてきたが、変更及び改善は本発明の精神及び範囲内でなされうる。

【0023】

【発明の効果】本発明の一体化マイクロセラミック化学プラントは以下のような利点を有する：

1. プラントの寸法を減少することにより乱流を導入する必要なしに短時間で良好な混合を確実にすることが可能である。
2. 大きな表面積対体積比の故により効率的な熱制御が可能である。比較的少量の化学物質がいかなる所定の時間においてもマイクロチャンネル内で用いられ得る故に化学爆発の危険はまた減少する。プロセスを非常に迅速にシャットダウンすることがまた可能である。
3. 触媒表面に反応物質を導入することにより大きな表面積対体積比を提供することにより触媒反応は増強される。付加的にマイクロセラミック室又はチャンネルの正確な幾何形状は接触時間及び化学反応プロセスを制御するために用いられ得る。
4. 集積マイクロセラミック化学プラントはプロセスパラメータ変化を容易にする現位置でのプロセスの正確なモニタを助ける。
5. 生産プロセスのスケールアップは非常にしばしばプロセスのパラメータを変更する必要がある反応容器の体積を増加するよりもむしろ集積マイクロセラミック化学プラントの配列を設けることにより可能である。
6. 集積マイクロセラミック化学の良好に画成された幾何形状及びセラミック材料の選択により化学プロセスを研究するための理想的な研究手段を提供する。
7. 集積マイクロセラミック化学プラントは大きさが小さい故に、ある場所から他の場所へ容易かつ低コストで輸送可能である。
8. 集積マイクロセラミック化学プラントは従来のシリコン技術を用いて作られたものよりも苛酷な化学環境及び高い動作温度に耐えうる。
9. 従来のシリコン技術と異なり、三次元に埋め込まれたチャンネル及び他の複雑な特徴はマイクロモルディング技術を用いてセラミック体内で形成される。
10. 集積マイクロセラミック化学プラントの最大の特質の一つは排出されるガスの発生及び毒性の化学的副産物の放出は集積マイクロセラミック化学プラントが環境に適応されようよう効果的に制御されることである。

【図面の簡単な説明】

【図 1】本発明による集積マイクロセラミック化学プラ

ントの分解図である。

【図 2】図 1 に示された一体化セラミック体の上から一番目のセラミック層の斜視図である。

【図 3】混合チャンネルを示す一体化セラミック体の上から二番目のセラミック層の斜視図である。

【図 4】図 3 の断面図である。

【図 5】反応室を示す一体化セラミック体の上から三番目のセラミック層の斜視図である。

【図 6】図 5 の 4 A-4 A に沿った断面である。

【図 7】図 5 の 4 B-4 B に沿った断面である。

【図 8】電気攪拌器を設けられた図 5 の反応室の斜視図である。

【図 9】加熱用の埋込螺旋コイルを有する図 5 の反応室の斜視図である。

【図 10】セラミックフィルタが示される図 5 の反応室の斜視図である。

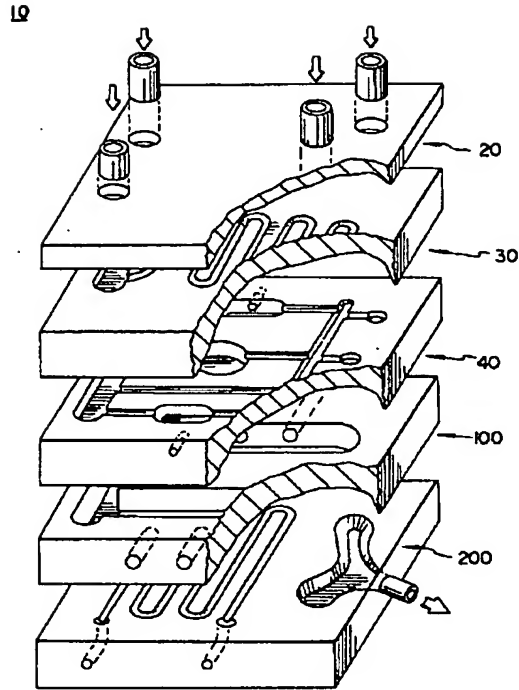
【図 11】化学反応処理を分析する室を示された一体化セラミック体の上から四番目のセラミック層の斜視図である。

【図 12】生成物を回収する室及びセラミック体を加熱する加熱ユニットを示した一体化セラミック体の底にある五番目のセラミック層の斜視図である。

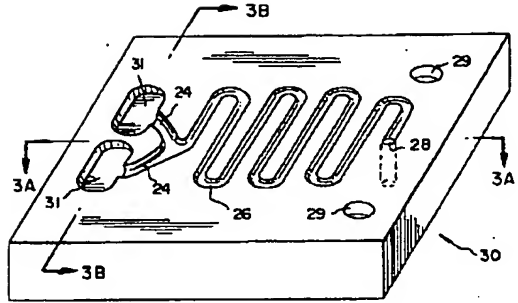
【符号の説明】

- 10 一体化セラミック体
- 12、14、82 通路
- 13、15、28、29、57、64 通孔
- 20 上部セラミック層
- 24、45、47、チャンネル
- 26 混合チャンネル
- 30 第二のセラミック層
- 31 混合室
- 40 第三のセラミック層
- 42、43 分配室
- 44、46、48 反応室
- 48a 分配マニフォールド
- 50、70 保存タンク
- 52、54、56、66、74、76 供給通孔
- 59 折り畳みブレード
- 60 導電性パッド
- 61 攪拌器
- 62 フィルタ
- 72 分析チャンネル
- 80 放出チャンネル
- 84 埋込加熱コイル
- 86 電氣的リード
- 100 第四のセラミック層
- 200 第五のセラミック層

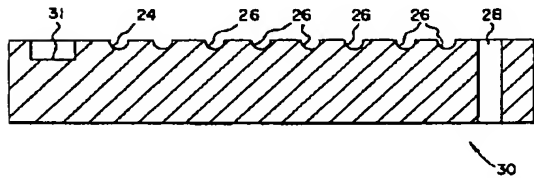
【図 1】



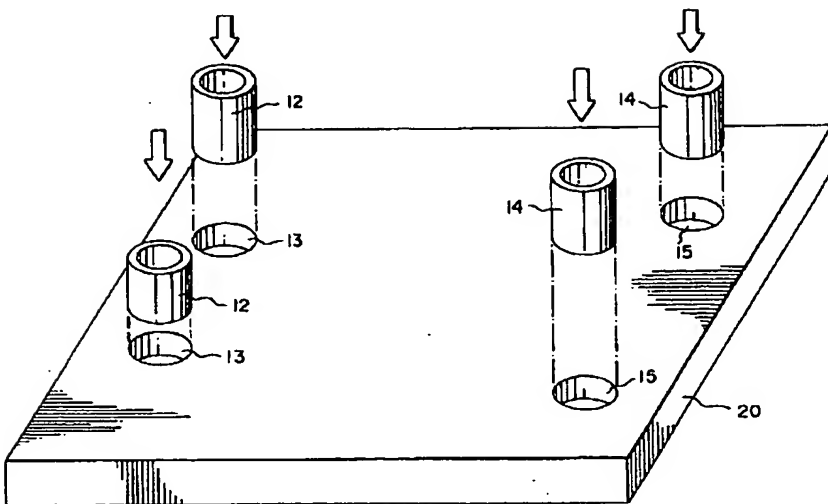
【図 3】



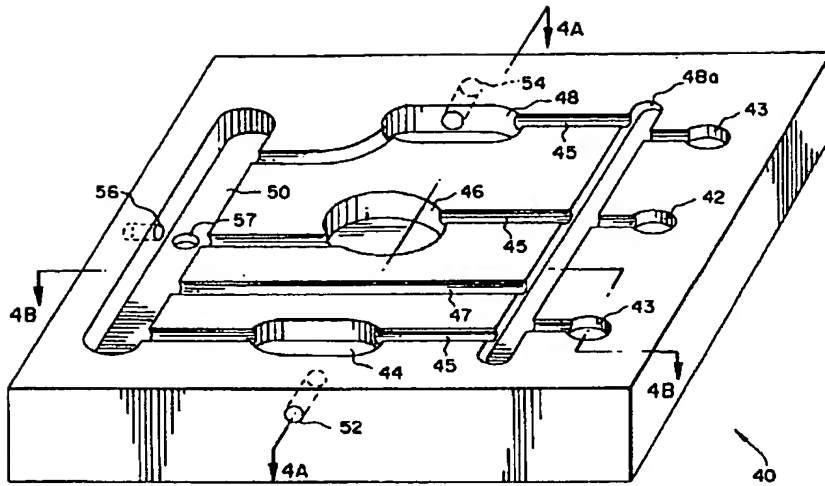
【図 4】



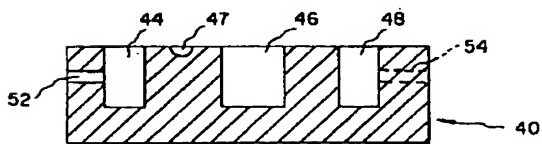
【図 2】



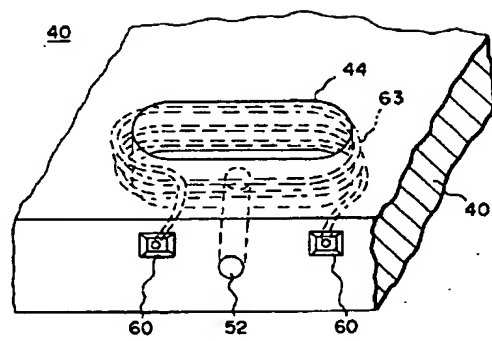
【図5】



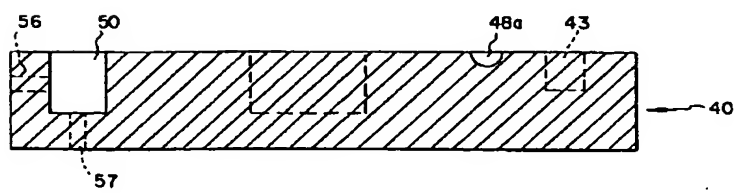
【図6】



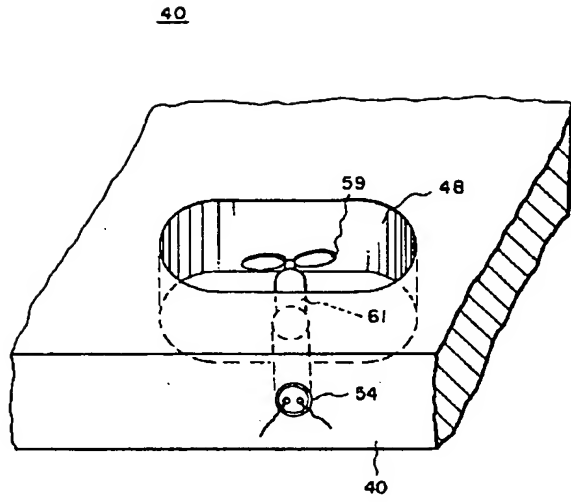
【図9】



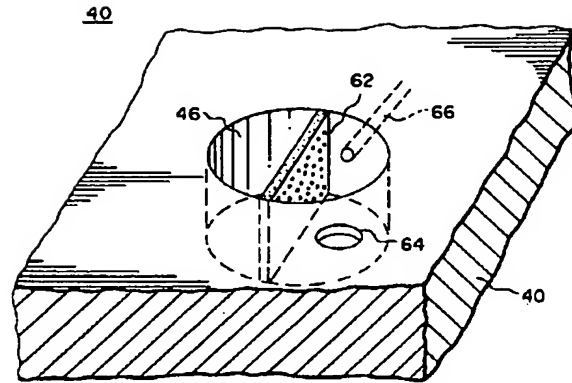
【図7】



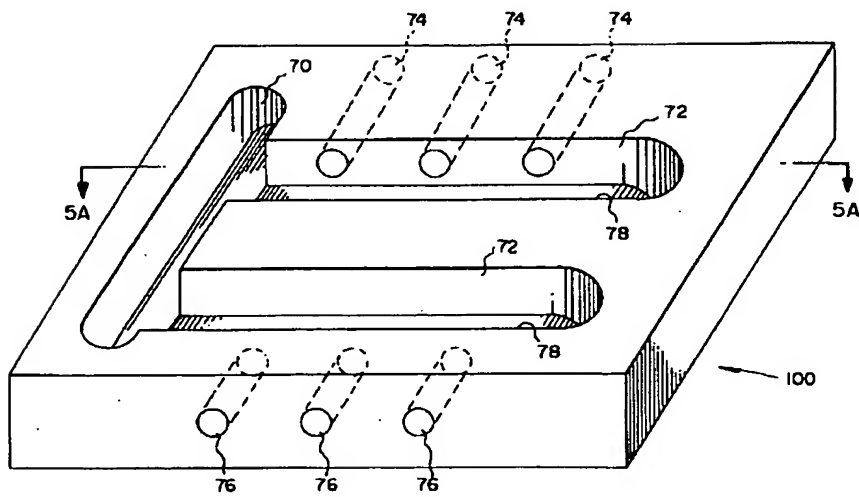
【図8】



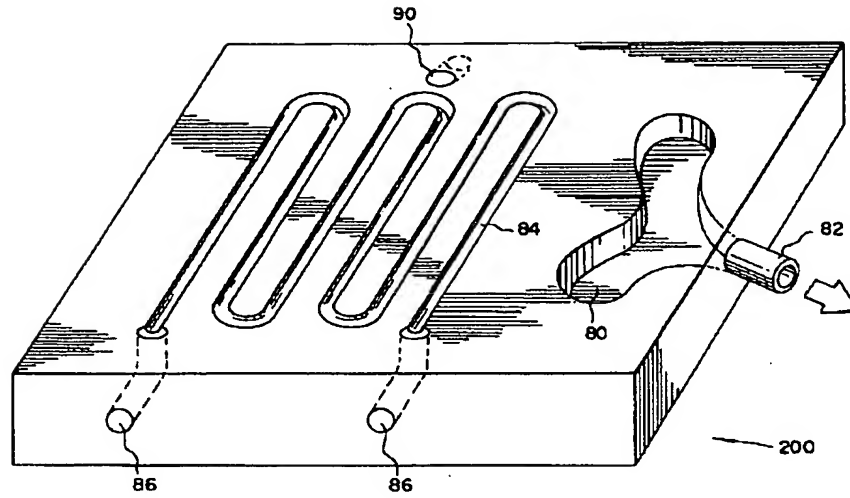
【図10】



【図11】



【図12】



フロントページの続き

(72)発明者 エドワード ビー ファーラニ
アメリカ合衆国、ニューヨーク 14086、
ランカスター、ヒルサイド・パークウェイ

**This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning
Operations and is not part of the Official Record**

BEST AVAILABLE IMAGES

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

- ☐ BLACK BORDERS
- ☐ IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- ☒ FADED TEXT OR DRAWING
- ☐ BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING
- ☐ SKEWED/SLANTED IMAGES
- ☐ COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS
- ☒ GRAY SCALE DOCUMENTS
- ☒ LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT
- ☐ REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY
- ☐ OTHER: _____

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.